

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第12条、法施行規則第56条）
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 12 JAN 2006

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 200412F-0427	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 2 0 0 4 / 0 1 8 5 7 2	国際出願日 (日.月.年) 13.12.2004	優先日 (日.月.年) 15.12.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. B01J23/02, B01D53/86, B01J32/00, 35/04, C01B33/26, C04B35/622, 38/00		
出願人 (氏名又は名称) 独立行政法人産業技術総合研究所		

<p>1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>6</u> ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で <u>9</u> ページである。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照）</p> <p><input type="checkbox"/> 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙</p> <p>b. <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で _____ (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第802号参照)</p> <p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第I欄 国際予備審査報告の基礎</p> <p><input type="checkbox"/> 第II欄 優先権</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成</p> <p><input type="checkbox"/> 第IV欄 発明の単一性の欠如</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第VI欄 ある種の引用文献</p> <p><input type="checkbox"/> 第VII欄 国際出願の不備</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第VIII欄 国際出願に対する意見</p>
--

国際予備審査の請求書を受理した日 17.10.2005	国際予備審査報告を作成した日 19.12.2005	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 大工原 大二	4G 3343
	電話番号 03-3581-1101 内線 3416	

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2005年4月)

第 I 欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願
- ☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である _____ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文
- ☐ 国際調査 (PCT規則12.3(a)及び23.1(b))
- ☐ 国際公開 (PCT規則12.4(a))
- ☐ 国際予備審査 (PCT規則55.2(a)又は55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-4, 6-8, 10-24, 29 _____ ページ、出願時に提出されたもの

第 5, 9, 25-28 _____ ページ*, 17. 10. 2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 5-34, 36-46 _____ 項、出願時に提出されたもの

第 _____ 項*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 1-4, 35 _____ 項*, 17. 10. 2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ 項*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-5 _____ ページ/図、出願時に提出されたもの

第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☐ 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図
- ☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
- ☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図
- ☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
- ☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第Ⅲ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成

次に関して、当該請求の範囲に記載されている発明の新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につき、次の理由により審査しない。

☐ 国際出願全体

☒ 請求の範囲 15, 27, 28, 42

理由：

☐ この国際出願又は請求の範囲 _____ は、国際予備審査をすることを要しない次の事項を内容としている（具体的に記載すること）。

☐ 明細書、請求の範囲若しくは図面（次に示す部分）又は請求の範囲 _____ の記載が、不明確であるため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

☒ 全部の請求の範囲又は請求の範囲 15, 27, 28, 42 _____ が、明細書による十分な裏付けを欠くため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

上記請求の範囲記載の事項に関して、本願明細書には対応する記載が存在しない。したがって、上記請求の範囲に係る発明は、本願明細書において十分に裏付けられているとはいえない。

☒ 請求の範囲 15, 27, 28, 42 _____ について、国際調査報告が作成されていない。

☐ 入手可能な配列表が存在せず、有意義な見解を示すことができなかった。

出願人は所定の期間内に、

☐ 実施細則の附属書Cに定める基準を満たす紙形式の配列表を提出しなかったため、国際予備審査機関は、認められた形式及び方法で配列表を入手することができなかった。

☐ 実施細則の附属書Cに定める基準を満たす電子形式の配列表を提出しなかったため、国際予備審査機関は、認められた形式及び方法で配列表を入手することができなかった。

☐ PCT規則13の3.1(a)又は(b)及び13の3.2に基づく命令に応じた、要求された配列表の遅延提出手数料を支払わなかった。

☐ 入手可能な配列表に関連するテーブルが存在しないため、有意義な見解を示すことができなかった。すなわち、出願人が、所定の期間内に、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を満たす電子形式のテーブルを提出しなかったため、国際予備審査機関は、認められた形式及び方法でテーブルを入手することができなかった。

☐ ヌクレオチド又はアミノ酸の配列表に関連するテーブルが電子形式のみで提出された場合において、当該テーブルが、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を満たしていない。

☐ 詳細については補充欄を参照すること。

第Ⅴ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 10-12, 39-41	有
	請求の範囲 1-9, 13, 14, 16-26, 29-38, 43-46	無
進歩性 (IS)	請求の範囲	有
	請求の範囲 1-14, 16-26, 29-41, 43-46	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 1-14, 16-26, 29-41, 43-46	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

文献 1: JP 2001-310128 A (株式会社 日本自動車部品総合研究所 外 1 名) 2001. 11. 06

文献 2: JP 2002-172329 A (株式会社 デンソー 外 1 名) 2002. 06. 18

文献 3: JP 49-129704 A (コーニング、グラス、ワークス) 1974. 12. 12

請求の範囲 1-9, 13, 14, 16-26, 29-37, 43-46 記載の発明は、国際調査報告で引用された文献 1 から新規性、進歩性を有さない。

文献 1 にはカオリン等を原料として製造したコーディエライトが記載されている(文献 1: 実施例 1 等参照)。当該コーディエライトは、本願明細書[0013], [0014]段落の記載等を参酌すれば、高い比表面積を有する針状結晶であると認められる。

文献 1 にはまた、コーディエライト結晶格子中の欠陥や表面のクラックを形成させることで、触媒を直接担持可能にすること、コーディエライト構成元素と Ce を置換すること、コーディエライトをハニカム体にする、触媒成分を担持させること等が記載されている(文献 1: 請求項 3, 5, 7, 9, 10-13, 19, 57, 76 等参照)。置換元素として用いられる Ce は、針状化の添加剤の役割も果たすものである。

出願人は答弁書において、文献 1[0012]段落に、文献 1 で得られるコーディエライトの比表面積が測定できないほど小さいものであることが明示されていると主張するが、当該記載は、欠陥やクラックからなる細孔の比表面積は、従来の方法では測定できないことを示しているだけであり、文献 1 で得られるコーディエライトの比表面積とは関係がない。このことは、本願明細書[0027]段落に文献 1[0012]段落と同様の記載があることから明らかである。

請求の範囲 1-14, 16-26, 29-41, 43-46 記載の発明は、国際調査報告で引用された文献 1-3 から進歩性を有しない。

文献 2 には、W等をコーディエライト構成元素と置換することで、触媒成分を直接担持可能にすることが記載されている(文献 2: 請求項 1, 6-8, [0046]段落参照)。置換元素として Ba 等アルカリ土類金属を用いることも記載されている(文献 2: [0051]-[0052]段落参照)。

文献 3 には、コーディエライトハニカム体の熱衝撃耐性を上げるため、焼成後のハニカム体を酢酸等で処理することが記載されている(文献 3: 請求項 1-3, 第 4 頁左下欄第 7-11 行参照)。

文献 2, 3 に記載された技術を文献 1 記載のコーディエライト、及びコーディエライトからなるハニカム体に適用することは、当業者ならば容易になし得ることである。特に、文献 3 に記載された技術を文献 1 記載のコーディエライト、及びコーディエライトからなるハニカム体に適用して得られたものは、高い比表面積を有すると推認される。

第VI欄 ある種の引用文献

1. ある種の公表された文書 (PCT規則 70.10)

出願番号 特許番号	公知日 (日. 月. 年)	出願日 (日. 月. 年)	優先日 (有効な優先権の主張) (日. 月. 年)
JP 2004-298709 A 「E, X」	28. 10. 2004	31. 03. 2003	

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則 70.9)

書面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の開示の日付 (日. 月. 年)	書面による開示以外の開示に言及している 書面の日付 (日. 月. 年)

第Ⅷ欄 国際出願に対する意見

請求の範囲、明細書及び図面の明瞭性又は請求の範囲の明細書による十分な裏付についての意見を次に示す。

a) 請求の範囲 15, 27, 28, 42 記載の事項に関して、本願明細書中には対応する記載が存在しない。したがって、上記請求の範囲に係る発明は、本願明細書において十分に裏付けられているとはいえない。

b) 請求の範囲 37 に挙げられた針状化添加剤のうち、本願明細書中に記載されているのはランタノイド元素、アルカリ土類金属元素のみであり、残りの遷移金属元素、アルカリ金属元素を用いることについては裏付けがなされていない。

c) 請求の範囲 38 に挙げられた針状形状粒子発現処理のうち、本願明細書中に記載されているのは酸処理のみであり（[0015]段落参照）、残りのアルカリ処理、ドライエッチングを行うことについては裏付けがなされていない。

コーディエライト組成になるように配合した出発粉末が用いられる。例えば、出発物質として、高純度のカオリン、タルク、アルミナ、シリカ粉末を使用し、これらをコーディエライト組成になるように秤量し、配合する。この際に、コーディエライトの生成温度を降下させるために、出発粉末に、例えば、酸化ボロン (B_2O_3)、酸化セリウム (CeO_2) 等を 3 wt % 以下添加することができる。また、ウィスカーを成長させるために、出発粉末に、例えば、酸化ストロンチウム (SrO_2) 等のアルカリ土類金属酸化物を 2 wt % 以下、或いは希土類酸化物を 5 wt % 以下添加することができる。更に、焼結体の焼結後の気孔率を上げるために、例えば、10～30 wt % のカーボンブラック等を添加することができる。それにより、例えば、38～55 % の気孔率の焼結体を得ることが可能となる。

[0012] 本発明では、上記出発粉末と添加剤の混合粉末を、例えば、ボールミル混合し、得られた混合スラリーを、エバポレーター、オープン等で乾燥させ、得られた乾燥体を粉碎し、分級し、得られた粉末を加圧成形し、大気中で 1200～1400℃ で焼結する。それにより、サブミクロンのコーディエライト針状結晶を有するコーディエライトバルクを作製することができる。

[0013] 本発明者らは、先に、上述の方法で作製されるサブミクロンオーダーの針状結晶で構成されるコーディエライト多孔体を開発したが、この多孔体は、通常が多結晶体のように粒界相を介して結晶相が接触する構造ではないため、高温における熱処理でも、比表面積が低下しないことが分かった。しかしながら、このコーディエライト多孔体を触媒担体として使用するには、更なる比表面積の増加が必要となる。

[0014] コーディエライト焼結体を酸で処理することにより多孔質化させる技術は既に公知であり、コーディエライト焼結体を強酸で処理することにより比表面積を劇的に向上させることができる。しかしながら、一般に報告されている高比表面積のコーディエライト多孔体は、結晶粒表面のシリカ相を多孔質化させるものであるため、例えば、1000℃ 以上の高温では、焼結が進行し、比表面積が極端に低下するという問題を有していた。本発明者らが、先に開発したコーディエライト多孔体では、原料としてカオリンを用いることにより、コーディエライトの針状結晶相を析出させることができ、これを弱酸を用いて処理することで、サブミクロンオーダーの直径を有する針状結晶相で構成

えられる。触媒成分イオンの直径と、直径、或いは幅が同等以上の細孔、すなわち 0.1 nm 以上の直径、或いは幅を有する細孔であれば、触媒成分のイオンを保持することが可能である。ただし、ハニカム構造体の強度を確保するためには、細孔の直径、或いは幅が触媒成分イオンの直径の 1000 倍程度以下であることが必要であり、これは直径が 0.1 nm の場合、100 nm 以下となる。また、細孔の深さは、担持する触媒成分イオンの直径の 1/2 倍以上あれば、触媒成分イオンを保持可能である。

[0027] 欠陥やクラックからなる細孔は極めて微細であり、通常の方法では比表面積を測定することができないため、本発明では、所定量の触媒成分を担持するに必要な細孔の数を規定する。現在使用されている三元触媒に担持されている触媒金属は、ハニカム構造体の容積 1 L 当たり、およそ 1.5 g である。触媒金属が排ガス浄化性能を現すためには、触媒金属粒子の直径が 1000 nm 程度好ましくは 20 nm 程度より小さい必要がある。

[0028] 現在使用されている三元触媒と同じ 1.5 g/L の白金が担持され、その白金粒子の直径が全て 1000 nm であるとする、担持された白金粒子の数は、 1.34×10^{11} 個/L、20 nm であるとする、 1.67×10^{16} 個/L である。触媒金属を担持するためには、触媒金属粒子 1 個に対しておよそ 1 個の細孔が必要であるため、触媒金属粒子を直接担持するために必要な細孔の数は、少なくとも 1×10^{11} 個/L ないしそれ以上、好ましくは 1×10^{16} 個/L ないしそれ以上である。また、触媒金属粒子の平均直径が全て 10 nm 程度になると、浄化性能は三元触媒と同等となる。この時の触媒金属粒子の個数は、 1.34×10^{17} 個/L であり、必要とされる細孔の数は、 1×10^{17} 個/L 以上であるとより好ましい。

[0029] 一方、セル壁厚 100 μ m、セル密度 400 c p s i (1 平方インチ当たりのセル個数) のコーディエライトハニカム構造体の重量は、容積 1 L 当たり約 230 g である。これが全てコーディエライト ($\text{Mg}_2\text{Al}_4\text{Si}_{15}\text{O}_{18}$) からなっていると、コーディエライト結晶の数に対する欠陥の数については、コーディエライトハニカム構造体に酸素欠陥又は格子欠陥が 1×10^{16} 個/L あり、結晶 1 個には欠陥が 1 個しか形成されないとする、コーディエライト結晶全体に対する欠陥を有する結晶の割合は、欠陥が 1×10^{17} 個の場合には $4 \times 10^{-5}\%$ となる。

[0030] コーディエライト結晶 1 個あたりに含有される欠陥の数も、欠陥が 1×10^{16} 個/L の

価を行なった結果を示す。熱処理条件は、大気中、24時間である。気孔率の違いによらず、各試料の比表面積は、1100℃処理の場合、およそ $10\text{ m}^2/\text{g}$ で一定であった。現在までに公知となっている高比表面積のコーディエライト多孔体は、本実施例よりも低温の1050℃で12時間加熱すると、焼結によりその比表面積が低下することが知られている。本発明のコーディエライト多孔体は、針状結晶のみで構成されるため、熱暴露による比表面積の低下が劇的に抑制されることが分かる。このことから、本発明の高比表面積コーディエライト多孔体は、公知の高比表面積コーディエライト多孔体に比べて、高温で安定であるといえる。

[0090] 以上のように、上記コーディエライトバルクを弱酸で処理することにより、ナノオーダーの針状結晶相で表面を覆う構造を有する新規な高比表面積を有するコーディエライト多孔体が作製できること、ナノオーダーの針状結晶相の生成が、弱酸の種類、その濃度、及び／又は処理時間で変化すること、及び得られたコーディエライト多孔体は、高温で安定であること等が確認された。

実施例 2

[0091] (1) 針状形状粒子を形成したセラミックハニカム担体の作製

コーディエライト化原料として SiO_2 と Al_2O_3 の化合物であるカオリンと、タルク、熔融シリカ、アルミナ、水酸化アルミニウムを使用し、Al源の10%を価数の異なるWで置換するため WO_3 を使用し、これらの出発原料の粉末をコーディエライトの理論組成点付近となるように調合した。この調合原料に針状化のための添加剤として SrO を2wt%、バインダ、潤滑剤及び保湿剤等を適量添加し、通常の方法で混練したものを、セル壁 $100\text{ }\mu\text{m}$ 、セル密度400cps i (1平方インチ当りのセル個数)、直径50mmのハニカム形状に成形した。得られたハニカム成形体を、乾燥後、大気雰囲気中で1260℃で焼成して格子欠陥を有するセラミック焼成体を得た。この焼成体を1規定、80℃のシュウ酸($(\text{COOH})_2$)で3時間処理した後、純水で十分洗浄して、本発明の直接担持セラミック担体を得た。SEM観察により針状形状粒子が得られていることを確認した。また、X線回折により、コーディエライトであることを確認した。粒子の長さ、径とそのアスペクト比、ハニカム体の比表面積、気孔率熱膨張係数、流路方向の圧壊強度の測定結果を表1に示す。

[0092] (2) セラミック触媒体の作製

上記のようにして得られた直接担持セラミック担体を、塩化白金酸 0.035 mol/L 、塩化ロジウム 0.025 mol/L を溶解させた水溶液に5分間、浸漬し、余剰の溶液を取り除いた後、乾燥させた。これを大気雰囲気、 600°C で焼き付けることで金属化させた。触媒担持量は $\text{Pt/Rh} = 1.0/0.2 \text{ g/L}$ であった。得られたセラミック触媒体の浄化性能を評価した。評価条件を下記のようにして、この時のプロピレン (C_3H_6) の50%浄化温度(新触T50)を測定した。50%浄化温度(T50)は、プロピレンの浄化率が50%となる温度とする(図5)。更に、大気雰囲気、 800°C 、5時間の熱耐久試験を施した後の50%浄化温度(劣触T50)を測定した。50%浄化温度評価の結果を表2に示す。

(評価条件)

セラミック担体: 35 cc ($\Phi 30 \times L 50$)

SV: $41000/\text{hr}$

ガス組成: $\text{A/F} = 14.55$

実施例 3

[0093] (1) セラミック担体の作製

コーディエライト化原料として SiO_2 と Al_2O_3 の化合物であるカオリンと、タルク、熔融シリカ、アルミナ、水酸化アルミニウムを使用し、Si源の5%に相当する WO_3 、同じくSi源の5%に相当する CoO を使用し、これらの出発原料の粉末をコーディエライトの理論組成点付近となるように調合した。この調合原料に針状化のための添加剤として SrO を $2 \text{ wt}\%$ 、バインダ、潤滑剤及び保湿剤等を適量添加し、通常の方法で混練したものを、セル壁 $100 \mu\text{m}$ 、セル密度 400 cpsi (1平方インチ当りのセル個数)、直径 50 mm のハニカム形状に成形した。得られたハニカム成形体を、乾燥後、大気雰囲気、 1260°C で焼成して、本発明の直接担持セラミック担体を得た。SEM観察により針状形状粒子が得られていることを確認した。また、X線回折により、コーディエライトであることを確認した。粒子の長さ、径とそのアスペクト比、ハニカム体の比表面積、気孔率熱膨張係数、流路方向の圧壊強度の測定結果を表1に示す。

[0094] (2) セラミック触媒体の作製

上記のようにして得られた直接担持セラミック担体を、塩化白金酸 0.035mol/L 、塩化ロジウム 0.025mol/L を溶解させた水溶液に5分間、浸漬し、余剰の溶液を取り除いた後、乾燥させた。これを大気雰囲気、 600°C で焼き付けることで金属化させた。触媒担持量は $\text{Pt/Rh}=1.0/0.2\text{g/L}$ であった。得られたセラミック触媒体の浄化性能を評価した。評価条件は実施例1と同様である。50%浄化温度評価の結果を表2に示す。

[0095] 比較例1

コーディエライト化原料としてタルク、溶融シリカ、アルミナ、水酸化アルミニウムを使用し、Si源の5%に相当する WO_3 、同じくSi源の5%に相当する CoO を使用し、これらの出発原料の粉末をコーディエライトの理論組成点付近となるように調合した。この調合原料にバインダ、潤滑剤及び保湿剤等を適量添加し、通常の方法で混練したものを、セル壁 $100\mu\text{m}$ 、セル密度 400cps i （1平方インチ当りのセル個数）、直径 50mm のハニカム形状に成形した。得られてハニカム成形体を、乾燥後、大気雰囲気、 1260°C で焼成して、直接担持可能な置換元素を有する直接担持セラミック担体を得た。SEM観察したが針状形状粒子ではなく、柱状形状粒子となっていた。また、X線回折により、コーディエライトであることを確認した。粒子の長さ、径とそのアスペクト比、ハニカム体の比表面積、気孔率熱膨張係数、流路方向の圧壊強度の測定結果を表1に示す。上記のようにして得られた直接担持セラミック担体を、塩化白金酸 0.035mol/L 、塩化ロジウム 0.025mol/L を溶解させた水溶液に5分間、浸漬し、余剰の溶液を取り除いた後、乾燥させた。これを大気雰囲気、 600°C で焼き付けることで金属化させた。触媒担持量は $\text{Pt/Rh}=1.0/0.2\text{g/L}$ であった。得られたセラミック触媒体の浄化性能を評価した。評価条件は実施例2と同様である。50%浄化温度評価の結果を表2に示す。

[0096] [表1]

実施例の各特性

	粒子長さ (μm)	粒子径 (μm)	アスペクト比	比表面積 (m^2/g)	気孔率 (%)	熱膨張係数 ($\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$)	流路方向の圧壊強度 (MPa)
実施例 2	1.57	0.16	9.8	32	32	0.8	8
実施例 3	1.14	0.20	5.7	6	48	1.2	13
比較例 1	5.60	2.00	2.8	0.3	34	0.7	14

[0097] [表 2]

50%浄化温度評価結果

	新触T50 ($^\circ\text{C}$)	劣触T50 ($^\circ\text{C}$)
実施例 2	242	254
実施例 3	248	256
比較例 1	255	265

[0098] 上記実施例 2、3 では SiO_2 と Al_2O_3 の化合物であるカオリンを使用し、針状化のための添加剤を使用することで、アスペクト比が 5 以上の針状コーディエライトが得られたが、比較例 1 ではカオリン、針状化のための添加剤を使用していないため、アスペクト比が 5 未満の柱状コーディエライトが得られた。針状コーディエライトが得られた実施例 2、3 では、比表面積が $1\text{ m}^2/\text{g}$ 以上となったが、比較例 1 では $1\text{ m}^2/\text{g}$ 未満で小さな値であった。また、50%浄化温度においても、実施例 2、3 では、比較例 1 より比表

請求の範囲

- [1] (補正後) セラミック粒子の内、少なくとも一部の粒子が少なくともSi、Al、Mgを含み、その形状が針状であることを特徴とする高比表面積セラミック体。
- [2] (補正後) セラミック体の表面の少なくとも一部に、少なくともSi、Al、Mgを含み、その形状が針状であるセラミック粒子をコートしたことを特徴とする高比表面積セラミック体。
- [3] (補正後) セラミック粒子の内、少なくとも一部の粒子が少なくともSi、Al、Mgを含み、その形状が針状であるセラミック体において、上記セラミック粒子表面に触媒成分を直接担持可能な細孔及び元素の少なくとも一方を有していることを特徴とする高比表面積セラミック体。
- [4] (補正後) セラミック体の表面の少なくとも一部に、少なくともSi、Al、Mgを含み、その形状が針状であるセラミック粒子をコートしたセラミック体において、上記セラミック粒子表面に触媒成分を直接担持可能な細孔及び元素の少なくとも一方を有していることを特徴とする高比表面積セラミック体。
- [5] 上記細孔が、セラミック粒子結晶格子中の欠陥、セラミック粒子表面の微細なクラック、及びセラミック粒子を構成する元素の欠損の内の少なくとも1種類からなる請求項3又は4記載のセラミック体。
- [6] 上記微細なクラックの幅が、100nm以下である請求項5記載のセラミック体。
- [7] 上記細孔が、担持する触媒イオンの直径の1000倍以下の直径、或いは幅を有し、この細孔の数が、 1×10^{11} 個/L以上である請求項5記載のセラミック体。
- [8] 上記細孔が、セラミック粒子の構成元素の一部を価数の異なる金属元素で置換することにより形成される欠陥からなる請求項5記載のセラミック体。
- [9] 上記欠陥は、酸素欠陥及び格子欠陥の少なくとも1種類からなり、上記針状形状粒子の単位結晶格子に欠陥を1個以上有するセラミック結晶を $4 \times 10^{-6}\%$ 以上含有する請求項8記載のセラミック体。
- [10] 上記セラミック体は、上記針状形状粒子を構成する元素のうち少なくとも1種類又はそれ以上の元素が構成元素以外の元素と置換しており、この置換元素に対して触媒成分を直接担持可能であることを特徴とする請求項3又は4記載のセラミック体。

- [11] 上記置換元素上に触媒成分が化学的結合により担持される請求項10記載のセラミック体。

- [27] 細孔分布の分布幅が狭いセラミックハニカム体からなる請求項 17 記載のセラミック体。
- [28] 上記分布幅が、平均細孔径の値の $\pm 1/2$ 内に含まれる細孔容積が 50% 以上である請求項 27 記載のセラミック体。
- [29] 請求項 1 から 28 のいずれかに記載のセラミック体に触媒成分を担持したことを特徴とするセラミック触媒体。
- [30] 上記触媒成分が、貴金属である請求項 29 記載のセラミック触媒体。
- [31] 上記触媒成分の担持量が、 0.1 g/L 以上である請求項 30 記載のセラミック触媒体。
- [32] 請求項 1 から 28 のいずれかに記載のセラミック体及び／又は請求項 29 から 31 のいずれかに記載のセラミック触媒体に助触媒成分を含有することを特徴とするセラミック触媒体。
- [33] 上記助触媒成分が、ランタノイド元素、遷移金属元素、アルカリ金属元素、アルカリ土類金属元素又はその酸化物、複合酸化物の 1 種類又は複数種類である請求項 32 記載のセラミック触媒体。
- [34] 上記助触媒成分の含有量が、 6 g/L 以上である請求項 33 記載のセラミック触媒体。
- [35] (補正後) Si 源として SiO_2 と Al_2O_3 の化合物からなる原料を使用して、セラミック粒子の内、少なくとも一部の粒子が少なくとも Si、Al、Mg を含み、その形状が針状であるセラミック体を製造することを特徴とする針状形状粒子を有する高比表面積セラミック体の製造方法。
- [36] 針状化のための添加剤を添加する請求項 35 記載の針状形状粒子を有するセラミック体の製造方法。
- [37] 上記針状化のための添加剤が、ランタノイド元素、遷移金属元素、アルカリ金属元素、及びアルカリ土類金属元素から選ばれる少なくとも 1 種類である請求項 36 記載の針状形状粒子を有するセラミック体の製造方法。
- [38] 酸処理、或いはアルカリ処理、或いはドライエッチングを施すことにより、針状形状粒子を発現させる請求項 35 記載の針状形状粒子を有するセラミック体の製造方法。
- [39] 上記酸処理が、弱酸による処理を施すことにより、針状形状粒子を発現させる請求